

Single-layer reflective super broadband circular polarizer and method of fabrication therefor

Patent number: JP11512849T

Publication date: 1999-11-02

Inventor:

Applicant:

Classification:

- international: G02B5/30; C08L83/04; C09K19/36

- european: F24J2/40D; G02B5/30L

Application number: JP19960517541T 19961029

Priority number(s): WO1996US17464 19961029; US19950550022 19951030

Also published as:

WO9716762 (A1)

EP0873537 (A1)

US5691789 (A1)

EP0873537 (A4)

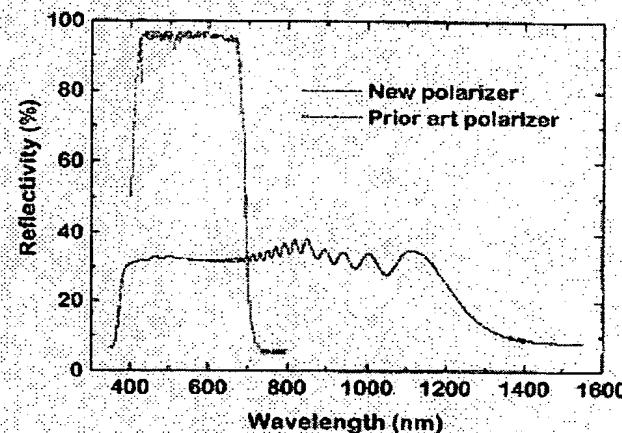
EP0873537 (B1)

[Report a data error here](#)

Abstract not available for JP11512849T

Abstract of corresponding document: **US5691789**

The present invention relates generally to broadband, reflective circular polarizers and, more particularly, to single layer super broadband, reflective circular polarizers. The polarizers of the present invention are made from a film of material, like a polymer having a cholesteric order, in which a second liquid crystal material, like a nematic liquid crystal, is distributed in a non-linear fashion across the thickness of the film in a plurality of liquid crystal-rich and liquid crystal-depleted sites in the polymer. The resulting polarizers have band passes approaching 2000 nm and reflect circularly polarized light which is either left-handed or right-handed depending on the final spiral structure of the materials utilized. The material of the present invention is fabricated by mixing commercially available polymers having a cholesteric order, a second liquid crystal material and a photoinitiator at a temperature which maintains the mixture in a liquid state. The polymer and the liquid crystal are present in a ratio by weight of 1:2, for example, and the photoinitiator is present in an amount of 0.6% by weight, for example, in the mixture. The heated mixture is then subjected to actinic radiation for a time and at an intensity sufficient to polymerize the polymer or the liquid crystal material or both. Under all polymerizing conditions the segregation rate of the liquid crystal material has to be greater than the polymerization rate of the material being polymerized. The liquid crystal segregates and diffuses, during polymerization, to sites of enlarged pitch in the polymer material from sites of shrunken pitch in the polymer material. Because the actinic light has an exponential intensity distribution due to light attenuation by, for example, light absorption, polymerization occurs in a non-linear fashion resulting in a non-linear distribution of the polymer and the liquid crystal material across the film.



Best Available Copy

This Page Blank (uspto)

(51) Int. C1. 6
 G 02 B 5/30
 C 08 L 83/04
 C 09 K 19/36

識別記号

F I
 G 02 B 5/30
 C 08 L 83/04
 C 09 K 19/36

審査請求 有 予備審査請求 有 (全42頁)

(21) 出願番号 特願平9-517541
 (86) (22) 出願日 平成8年(1996)10月29日
 (85) 翻訳文提出日 平成10年(1998)4月30日
 (86) 國際出願番号 PCT/US96/17464
 (87) 國際公開番号 WO97/16762
 (87) 國際公開日 平成9年(1997)5月9日
 (31) 優先権主張番号 08/550,022
 (32) 優先日 1995年10月30日
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(71) 出願人 レヴェオ・インコーポレーテッド
 アメリカ合衆国ニューヨーク州10532, ホ
 ーソーン, スカイライン・ドライブ 8
 (72) 発明者 リ, レ
 アメリカ合衆国ニューヨーク州10598, ニ
 ューヨーク, ヨークタウン・ハイツ, オー
 バーリック・アベニュー 3491
 (72) 発明者 ジャング, ジンチュー
 アメリカ合衆国ニューヨーク州10520, ク
 ロウトン・オン・ハドソン, シニック・
 ドライブ 27-ピー
 (74) 代理人 弁理士 社本 一夫 (外5名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】超広帯域偏光反射材料

(57) 【要約】

超広帯域円偏光膜材料、並びに、その新規な製造方法及び使用方法が開示される。円偏光材料は、コレステリック配列を有するCLCポリマーの如き材料から成る膜から形成される。この膜においては、ネマチック液晶物質の如き液晶物質が、膜の厚さ方向において非直線的に分布されていて、CLCポリマーの複数の液晶に富むサイト及び複数の液晶が欠乏するサイトに設けられている。重合したCLC物質のCLC分子の螺旋のピッチは、CLC物質の深さ方向(すなわち、表面に対して直角な方向)に沿って非直線的(例えば、指數関数的)に変化する。その結果生じた円偏光材料は、2,000 nmに達する動作帯域にわたって、反射特性及び透過特性を有している。使用する物質の最終的な螺旋構造に応じて、CLC円偏光材料は、左型又は右型の円偏光光線を反射する。

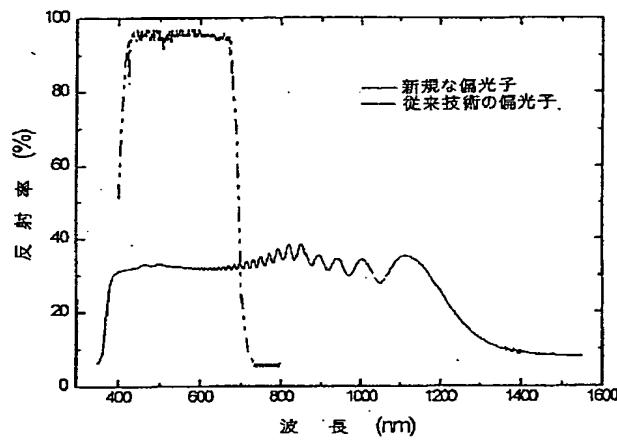


FIG. 2

【特許請求の範囲】

1. 広帯域偏光子であつて、少なくとも1つの物質、及び、少なくとも1つの液晶物質を有する膜を備えており、前記少なくとも1つの物質は、コレステリック配列、及び、前記膜の厚さ方向においてピッチが非直線的に変化するサイトを有しており、前記少なくとも1つの液晶物質も同様に、前記膜の厚さ方向に沿つて非直線的に分布されて前記サイトに設けられている、ことを特徴とする広帯域偏光子。
2. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記非直線的に変化するピッチは、指數関数的に変化するピッチであることを特徴とする広帯域偏光子。
3. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記物質は、ポリマーであることを特徴とする広帯域偏光子。
4. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記物質は、モノマーであることを特徴とする広帯域偏光子。
5. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記物質は、オリゴマーであることを特徴とする広帯域偏光子。
6. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つの液晶物質は、ネマチック液晶であることを特徴とする広帯域偏光子。
7. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つの液晶物質は、スメクチック液晶であることを特徴とする広帯域偏光子。
8. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、光重合可能であることを特徴とする広帯域偏光子。
9. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つの液晶物質は、光重合可能であることを特徴とする広帯域偏光子。
10. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方は、重合可能であることを特徴とする広帯域偏光子。

1 1. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも 1 つの液晶物質の偏析速度が、前記いずれかの重合される物質の重合速度よりも大きいことを特徴とする広帯域偏光子。

1 2. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも 1 つの液晶物質の偏析速度が、コレステリック配列を有する前記少なくとも 1 つの物質の重合速度よりも大きいことを特徴とする広帯域偏光子。

1 3. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも 1 つの液晶物質の偏析速度が、コレステリック配列を有する前記物質の重合速度よりも大きいことを特徴とする広帯域偏光子。

1 4. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも 1 つの物質は、コレステリック液晶であることを特徴とする広帯域偏光子。

1 5. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも 1 つの物質は、環状の液晶シロキサンであることを特徴とする広帯域偏光子。

1 6. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも 1 つの物質は、カチオン重合によって重合される物質であることを特徴とする広帯域偏光子。

1 7. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも 1 つの液晶物質は、カチオン重合によって重合される物質であることを特徴とする広帯域偏光子。

1 8. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも 1 つの液晶物質は、低分子量の物質であることを特徴とする広帯域偏光子。

1 9. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記膜は、入射する円偏光電磁放射線を全部反射するに十分な厚さを有していることを特徴とする広帯域偏光子。

2 0. 請求項 1 に記載の広帯域偏光子において、前記膜は、可視スペクトル領域の入射する円偏光電磁放射線を反射することを特徴とする広帯域偏光子。

21. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記膜は、電磁スペクトルの赤外線領域の入射する円偏光電磁放射線を反射することを特徴とする広帯域偏光子。

22. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記膜は、電磁スペクトルの紫外線領域の入射する円偏光電磁放射線を反射することを特徴とする広帯域偏光子。

23. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方は、液体状態にあることを特徴とする広帯域偏光子。

24. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方は、固体状態にあることを特徴とする広帯域偏光子。

25. 広帯域偏光子を製造する製造方法であつて、

コレステリック配列及び少なくともあるピッチを有する少な(とも1つの物質、及び、少なくとも1つの液晶物質から膜を形成する形成工程を備えており、前記少なくとも1つの液晶物質を前記膜の厚さ方向において非直線的に分布させ、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質の前記少なくともあるピッチよりも大きなピッチを有していて同様に非直線的に分布された複数のサイトに設けることを特徴とする製造方法。

26. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、ポリマーであることを特徴とする製造方法。

27. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、モノマーであることを特徴とする製造方法。

28. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、オリゴマーであることを特徴とする製造方法。

29. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、低分子量の物質であることを特徴とする製造方法。

30. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質

は、ネマチック液晶であることを特徴とする製造方法。

31. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質は、スマクチック液晶であることを特徴とする製造方法。

32. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、光重合可能であることを特徴とする製造方法。

33. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質は、光重合可能であることを特徴とする製造方法。

34. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方は、重合可能であることを特徴とする製造方法。

35. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質の偏析速度が、重合されるいづれかの物質の重合速度よりも大きいことを特徴とする製造方法。

36. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質の偏析速度が、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質の重合速度よりも大きいことを特徴とする製造方法。

37. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質の偏析速度が、その重合速度よりも大きいことを特徴とする製造方法。

38. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、コレステリック液晶であることを特徴とする製造方法。

39. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、環状の液晶であることを特徴とする製造方法。

40. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、カチオン重合によって重合される物質であることを特徴とする製造方法。

41. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質は、カチオン重合によって重合される物質であることを特徴とする製造方法。

42. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質は、低分子量の物質であることを特徴とする製造方法。

43. 請求項25に記載の製造方法において、前記膜は、入射する円偏光電磁放射線を全部反射するに十分な厚さを有していることを特徴とする製造方法。

44. 請求項25に記載の製造方法において、前記膜は、可視スペクトル領域の入射する円偏光電磁放射線を反射することを特徴とする製造方法。

45. 請求項25に記載の製造方法において、前記膜は、電磁スペクトルの赤外線領域の入射する円偏光電磁放射線を反射することを特徴とする製造方法。

46. 請求項25に記載の製造方法において、前記膜は、電磁スペクトルの紫外線領域の入射する円偏光電磁放射線を反射することを特徴とする製造方法。

47. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方は、液体状態にあることを特徴とする製造方法。

48. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方は、固体状態にあることを特徴とする製造方法。

49. 請求項25に記載の製造方法において、

前記形成工程は、

コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質をある重量比で混合して混合物を形成する混合工程を含むことを特徴とする製造方法。

50. 請求項44に記載の製造方法において、前記ある混合比は、重量比で2:1であることを特徴とする製造方法。

51. 請求項48に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質、及び、前記少なくとも1つの液晶物質の前記ある重量比は、1:3から6:1の範囲にあることを特徴とする製造方法。

52. 請求項48に記載の製造方法において、更に、フォトイニシエータを前記混合物に添加する工程を備えることを特徴とする製造方法。

53. 請求項48に記載の製造方法において、更に、キラル添加剤を前記混合物に添加する工程を備えることを特徴とする製造方法。

54. 請求項51に記載の製造方法において、更に、前記混合物を液体状態に維持するに十分な温度で前記混合物を加熱する工程を備えることを特徴とする製造方法。

55. 請求項53に記載の製造方法において、更に、前記混合物に電磁放射線を照射し、これにより、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質及び前記少なくとも1つの液晶物質の少なくとも一方を重合させる工程を備えることを特徴とする製造方法。

56. 請求項54に記載の製造方法において、前記混合物を照射する工程は、前記混合物に化学作用放射線を与えることを含むことを特徴とする製造方法。

57. 単層偏光子を形成する製造方法であって、

第1の液晶物質及び第2の液晶物質から膜を形成する形成工程を備えており、前記第1及び第2の液晶物質の一方は、前記膜の厚さ方向において非直線状の分布を前記膜に有していて、他方の液晶物質に同様に非直線状に分布されたサイトに設けられていることを特徴とする製造方法。

58. 単層偏光子を形成する製造方法であって、

第1の液晶物質及び第2の液晶物質から膜を形成する工程を備えており、前記第1及び第2の液晶物質の一方は、前記膜の厚さ方向において非直線状の分布を前記膜に有していて、他方の液晶物質に同様に非直線状に分布されたサイトに設けられていることを特徴とする製造方法。

59. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記物質は、非架橋性の低分子量液晶化合物であることを特徴とする広帯域偏光子。

60. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記物質は、キラル基と化学的に結合されていることを特徴とする広帯域偏光子。

61. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記物質は、少なくとも1つのキラル添加剤と混合されたネマチックであること

を特徴とする広帯域偏光子。

62. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、熱的に重合可能であることを特徴とする広帯域偏光子。

63. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、熱的に重合可能であり、該熱的な重合は、光子吸収によって生ずることを特徴とする広帯域偏光子。

64. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つの液晶物質。

65. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つの液晶物質は、熱的に重合可能であり、該熱的な重合は、光子吸収によって生ずることを特徴とする広帯域偏光子。

66. 請求項1に記載の広帯域偏光子において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、アクリルであることを特徴とする広帯域偏光子。

67. 広帯域偏光子であつて、

コレステリック配列を有する唯一の液晶物質及び少なくとも1つのキラル物質から成る膜を備えており、該膜は、この膜の厚さ方向において非直線的に変化するサイトを有していることを特徴とする広帯域偏光子。

68. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記唯一の液晶物質は、ポリマーであることを特徴とする広帯域偏光子。

69. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記唯一の液晶物質は、モノマーであることを特徴とする広帯域偏光子。

70. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記唯一の液晶物質は、オリゴマーであることを特徴とする広帯域偏光子。

71. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記唯一の液晶物質は、非架橋性の液晶であることを特徴とする広帯域偏光子。

72. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記唯一の液晶物質は、ネマチックであることを特徴とする広帯域偏光子。

73. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記唯一の液晶物質は、永続的に結合された少なくとも1つのキラル基を有していることを特徴とする広帯域偏光子。

74. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つのキラル物質は、非架橋性を有していることを特徴とする広帯域偏光子。

75. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つのキラル物質は、重合可能であることを特徴とする広帯域偏光子。

76. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つのキラル物質は、メソジエニック基を有していないことを特徴とする広帯域偏光子。

77. 請求項67に記載の広帯域偏光子において、前記少なくとも1つのキラル物質は、メソジエニック基を有していることを特徴とする広帯域偏光子。

78. 広帯域偏光子の製造方法であって、

唯一の液晶物質及び少なくとも1つのキラル物質から膜を形成する形成工程を備え、前記唯一の液晶物質を、前記膜の厚さ方向において非直線的に分布させ、前記唯一の液晶物質の少なくともあるピッチよりも大きなピッチを有していて同様に非直線的に分配された複数のサイトに設けることを特徴とする製造方法。

79. 請求項78に記載の製造方法において、前記唯一の液晶物質は、ポリマーであることを特徴とする製造方法。

80. 請求項78に記載の製造方法において、前記唯一の液晶物質は、モノマーであることを特徴とする製造方法。

81. 請求項78に記載の製造方法において、前記唯一の液晶物質は、オリゴマーであることを特徴とする製造方法。

82. 請求項78に記載の製造方法において、前記唯一の液晶物質は、非架橋性の液晶であることを特徴とする製造方法。

83. 請求項78に記載の製造方法において、前記唯一の液晶物質は、ネマチックであることを特徴とする製造方法。

84. 請求項78に記載の製造方法において、前記唯一の液晶物質は、永続的に結合された少なくとも1つのキラル基を有していることを特徴とする製造方法。

。

85. 請求項78に記載の製造方法において、前記少なくとも1つのキラル物質は、非架橋性を有していることを特徴とする製造方法。

86. 請求項78に記載の製造方法において、前記少なくとも1つのキラル物質は、重合可能であることを特徴とする製造方法。

87. 請求項78に記載の製造方法において、前記少なくとも1つのキラル物質は、メソジエニック基を有していないことを特徴とする製造方法。

88. 請求項78に記載の製造方法において、前記少なくとも1つのキラル物質は、メソジエニック基を有していることを特徴とする製造方法。

89. 請求項25のに記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、熱的に重合可能であることを特徴とする製造方法。

90. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、光子吸収によって熱的に重合可能であることを特徴とする製造方法。

91. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質は、熱的に重合可能であることを特徴とする製造方法。

92. 請求項25に記載の製造方法において、前記少なくとも1つの液晶物質は、光子吸収によって熱的に重合可能であることを特徴とする製造方法。

93. 請求項25に記載の製造方法において、コレステリック配列を有する前記少なくとも1つの物質は、アクリル系の液晶であることを特徴とする製造方法。

94. 請求項78に記載の製造方法において、

前記形成工程は、

前記唯一の液晶物質及び前記少なくとも1つのキラル物質をある重量比で混合して混合物を形成する工程を含むことを特徴とする製造方法。

95. 単層偏光子であって、

液晶物質及びキラル物質から成る膜を備えており、前記液晶物質及びキラル物質の一方は、前記膜の厚さ方向において該膜に非直線状の分布を有していて、他方の物質に同様に非直線的に分布されているサイトに設けられていることを特徴

とする単層偏光子。

96. 単層偏光子を形成する方法であつて、

液晶物質及びキラル物質から膜を形成する形成工程を備えており、前記液晶物質及びキラル物質の一方は、前記膜の厚さ方向において該膜に非直線的な分布を有していて、他方の物質に同様に非直線的に分布されているサイトに設けられていることを特徴とする方法。

【発明の詳細な説明】

超広帯域偏光反射材料

発明の背景

技術分野

本発明は、一般的に、2,000 nmに達する「超」広帯域の反射帯及び透過帯特性を有する単層のコレステリック液晶（C L C）膜材料から形成された円偏光反射材料に関し、また、そのような材料を製造しまた色々の用途で使用する種々の新規な方法に関する。

背景技術

今日の世界においては、広帯域の反射特性及び透過特性を有する円偏光材料を必要とする種々の用途が存在する。そのような用途は、光学装置に使用される偏光フィルタから、C L C系の塗料及びインクの製造に使用される高い反射性を有する染料まで、広い範囲に存在している。

従来技術の文献を詳細に検討すると、以下の記載において「フィリップスの文献」と呼ぶ、欧州特許出願94200026.6号（発明の名称：“Cholesteric Polarizer and Manufacture Thereof”、発行日：1994年7月20日、出願人：Phillips Electronics, N.V.（オランダ国Eindhoven））が、最も重要な従来技術の文献であることが判明した。その理由は、フィリップスの文献は、広帯域の反射特性及び透過特性を有する単層のC L C膜材料を形成する幾つかの方法を開示しているからである。上記フィリップスの文献は、広帯域（約400 nmまでに制限されている）の反射特性及び透過特性を得るために、紫外線染料をC L C混合物に添加して、C L C材料のピッチを、膜の一方の面におけるその最大値から膜の他方の面におけるその最小値まで、「直線的」に変化させ、最大ピッチと最小ピッチとの間の差を100 nmよりも大きくすることを必要としている。

上記フィリップスの文献に開示される第1の製造技術によれば、従来技術のC

L C偏光材料は、キラルモノマー（chiral monomer）及びネマトジェニックモノマー（nematogenic monomer）の2つのモノ

マー（各々のモノマーは、異なる反応性を有している）から形成されている。化学作用放射線による上記混合物の重合反応の間に、紫外線（UV）吸収染料を元の混合物に導入することにより、膜の光学活性層の前後で、化学作用放射線の強度の直線的な変化（すなわち、化学作用放射線強度の直線的な勾配）が行われる。放射線強度のこの直線的な勾配は、反応性の最も低いモノマーの中に優先的に組み込まれる反応性の最も高いモノマーを最も強い放射線強度の箇所に生じさせる。その結果、重合反応の間に自由なモノマーの少なくとも1つの濃度勾配が形成され、該モノマーをモノマー濃度が低い箇所からモノマー濃度が高い箇所へ拡散させる。反応性が高いモノマーは、放射線強度が最も大きな箇所へ拡散する。この拡散プロセスにより、形成されたポリマー物質の重合反応の間に放射線強度が最も大きい領域に、反応性のポリマーの増加が生ずる。その結果、そのような物質の組成は、膜の表面に直角な方向において変化し、これにより、分子の螺旋のピッチの「直線的な変化」が、ポリマーによって形成される層を生ずる。液晶物質は、上記膜の厚さ方向において直線的に分布される。上記ピッチの変化すなわちピッチ変動は、分子の螺旋のピッチの変動すなわち変化に比例する帯域幅を上記光学活性層に与える。薄いCLC膜構造において、上記従来技術の製造技術を用いて達成することのできる最大帯域幅の変動は、約400nmである。

上記フィリップスの文献に開示される第2の製造方法によれば、重合可能なCLC膜の中へのモノマーの自発的な拡散の次に、紫外線重合すなわちUV重合が行われる。この製造方法は、反応性のモノマーをCLC材料の重合された膜の表面に堆積させることによって、実行される。モノマーがCLC膜の層の中に拡散することにより、拡散の前の層の中における濃度勾配が停止する。その結果、元のCLC層は若干膨潤して、分子の螺旋のピッチが増大する。これにより、濃度勾配が生じ、この濃度勾配により、膜の厚さ方向においてピッチの「直線的な変化」が生ずる。

化学作用放射線による上記層の重合反応は、拡散を停止させ、薄いCLC膜構造において400nmに達する反射特性を有する広帯域偏光子をもたらす。注目すべき点は、上記フィリップスの文献に開示される製造技術においては、

その出発材料に使用される2つの主要な材料又は物質が、異なる反応性を有するモノマーであるという特徴を有していることである。また、上記フィリップスの文献の製造プロセスにおいて、染料を使用しない場合には、拡散勾配が形成されず、上記主要な材料又は物質が共に重合され、狭帯域の偏光子が生ずる。

上述のフィリップスの文献は、薄膜構造において400 nmに達する反射特性を有するCLC系の円偏光膜を製造するための幾つかの方法を開示しているが、そのような帯域幅特性は、5倍程度の帯域幅特性が必要とされる多くの用途においては、不適当である。また、そのような従来技術の製造方法は、組成物質が共に重合可能であることを必要とし、これにより、製造に使用することのできる多くのタイプの商業的に入手可能な材料又は物質を制限する。

従って、総ての従来技術の円偏光材料によってもたらされる帯域幅よりも十分に大きな帯域幅にわたって反射特性及び透過特性を有する円偏光膜材料が、当業界において非常に必要とされている。

発明の開示

従って、本発明の主要な目的は、従来技術の円偏光CLC材料の反射及び透過の帯域幅特性よりも十分に高い反射及び透過の帯域幅特性を有する、円偏光材料を提供することである。

本発明の別の目的は、2,000 nmに達する反射及び透過の帯域幅特性を有する、上述の如き円偏光材料を提供することである。

本発明の他の目的は、改善されたスペクトル及び帯域位置の特性を有する上述の如き円偏光材料を提供することである。

本発明の他の目的は、CLC材料の单一の薄膜として実現され、CLC分子の螺旋ピッチがCLC膜構造の深さ方向（すなわち、表面に直角な方向）に沿って非直線的に変化するようになされた、上述の如き帯域幅特性を有する円偏光材料を提供することである。

本発明の別の目的は、極めて広帯域の偏光インク及び／又は塗料の形態の上述の如き円偏光材料を提供することである。

本発明の他の目的は、塗装作業、印刷作業等を含む種々のカラー用途に使用さ

れる、C L C系のカラーペイント及び／又はインクから成るパレットを提供することである。

本発明の別の目的は、C L C膜構造として実現され、色を濾波して伝達する用途に適したノッチ特性を有する、超広帯域の円（又は、直線）偏光子を提供することである。

本発明の他の目的は、同じ全厚さを有する従来技術のC L C偏光膜の範囲の2倍よりも大きな反射及び透過帯域を有する、超広帯域C L C偏光膜を提供することである。

本発明の他の目的は、極めて広い帯域を有する単層偏光子であって、該偏光子の液晶成分が偏光子の厚さ方向に沿って非直線的な分布を示す、単層偏光子を提供することである。

本発明の別の目的は、液晶物質を非重合性又は低分子量のものとすることができる上述の如き円偏光材料を提供することである。

本発明の他の目的は、極めて広帯域のスペクトル反射及び透過特性、低い光学的損失特性、高い偏光効率、及び、低い製造コストを有する円偏光材料の製造方法を提供することである。

本発明の別の目的は、極めて広帯域のスペクトル幅特性、低い光学的損失特性、高い偏光効率、及び、低い製造コストを有して簡単に製造することができる円偏光材料の製造方法を提供することである。

本発明の別の目的は、重合可能なC L C液晶物質及びフォトイニシエータから成る混合物を使用し、上記重合可能なC L Cの重合反応の間に、上記液晶物質の偏析速度を重合される重合可能なC L Cの重合速度よりも大きくなるように制約する、極めて広帯域の偏光子の製造方法を提供することである。

本発明の別の目的は、紫外線染料を使用せずに極めて広帯域の偏光子を製造する方法を提供することである。

本発明の別の目的は、重合される重合可能なC L Cを、重合可能なC L C物質の中の光線の損失による化学作用放射線（例えば、紫外線）の非直線的（例えば、指數関数的）な強度勾配に暴露させ、これにより、C L C分子の螺旋ピッチの

非直線的な変動すなわち変化を生じさせることにより、超広帯域円偏光材料を製造する方法を提供することである。

本発明の別の目的は、商業的に入手可能なコレステリック液晶ポリマー及び液晶物質を組成として用いて、超広帯域円偏光材料を製造する方法を提供することである。

本発明の更に別の目的は、約2,000 nm程度までの超広帯域にわたって反射及び放射特性を有する自立型の円偏光膜を製造する方法を提供することである。

上記及び他の本発明の目的は、以下の記載及び請求の範囲から明らかとなろう。

本発明の第1の特徴によれば、新規な構造を有する円偏光材料が開示される。従来技術の反射型の円偏光子とは異なり、本発明の円偏光材料は、超広帯域の波長（例えば、2,000 nmまで）にわたって反射及び透過の帯域幅特性を有している。本発明の円偏光材料は、コレステリック配列を有する重合可能な物質から成る膜（例えば、重合可能なCLC膜）から形成されており、該膜においては、非架橋性の液晶分子（例えば、ネマチック層を有する）が、重合可能なCLC膜の厚さ方向に沿う液晶に富む複数のサイト及び液晶が欠乏する複数のサイトに、非直線的に分布されている。使用する重合可能なCLC材料の最終的な螺旋構造に応じて、その結果生ずる本発明の円偏光膜は、電磁スペクトルの上述の超広帯域領域の範囲内の波長を有する左型又は右型の円偏光光線を反射するようになる。

本発明の超広帯域円偏光反射材料を用いて、種々のタイプの製品を製造することができる。すなわち、そのような製品とは、超広帯域円偏光パネル；超広帯域色フィルタ；インク及び／又は塗料の着色剤として使用される超広帯域円偏光顔料フレーク；グレア（閃光）を低減するサングラス；SMI系の三次元立体ディスプレイ及び観察の用途に使用されるマイクロ偏光パネル及び偏光眼用装着具等である。

本発明の第2の特徴によれば、本発明の超広帯域円偏光材料を製造する新規な方法が開示される。この方法によれば、コレステリック液晶（CLC）ポリマー

(コレステリック配列を有する)が、非架橋性の液晶物質(例えば、ネマチック配列を有する)、フォトイニシエータ、及び、キラル添加剤と混合される。このキラル添加剤は、混合物をコレステリック配列を有する液体状態に維持する温度で上記ポリマーに化学的に結合されるもの又は結合しないものとすることができる。上記液晶物質、及び、上記キラル添加剤(キラル基)と化学的に結合した重合可能なCLCは、1:2の重量比で存在するのが好ましいが、関係する総ての条件に応じて、3:1乃至1:6の重量比で存在することができる。フォトイニシエータは、混合物の中に0.6重量%の量だけ存在するのが好ましいが、重合可能なCLC材料の重合反応を開始させるに十分な量であれば、より大きな又はより少ない量で存在することができる。一般的に、混合物に導入されるフォトイニシエータの量は、その混合物が化学作用放射線に暴露された時に、重合可能なCLCの重合速度が上記液晶物質の偏析速度よりも遅くなるように、選択すべきである。

上記混合物を例えば92°Cまで加熱してそのコレステリック配列を維持する間に、上記混合物は、上記重合可能なCLC又は液晶物質あるいはその両方を重合させるに十分な強度の化学作用放射線(例えば、紫外線)に十分な時間にわたって暴露される。上記化学作用光線は、例えば、光線吸収及び/又は光散乱による光線の減衰に起因する指數関数的な強度分布を有しているので、重合反応は非直線的に生じ、これにより、上記ポリマー及び液晶物質を上記膜を横断する方向において、非直線的に分布させる。重合反応の間に、相分離が生ずる。上記液晶物質の偏析速度は、重合される重合可能なCLCの重合速度よりも大きくなるように選択される。従って、上記液晶物質は、偏析して、重合可能なCLC材料のピッチが短くなったサイトから重合可能なCLC材料のピッチの長くなったサイトへ拡散する。その結果、重合可能なCLC膜の一方の表面から他方の表面まで、指數関数的に分布されたピッチが生ずる。本円偏光反射材料の新規な組成は、該円偏光反射材料の超広帯域の反射及び透過特性を顕著に改善することが証明されている。

液晶物質の螺旋ピッチをどのような非直線的な分布にしても、本発明の教示に

従って、超広帯域円偏光材料を製造することができるが、本明細書に開示される好ましい実施例は各々、偏光膜の一方の表面から他方の表面まで指数関数的に分布されたピッチを有している。

図面の簡単な説明

本発明の目的及び特徴のより十分な理解を図るために、添付の図面を参照して例示的な実施例に関する以下の詳細な説明を参考されたい。

図面において、

図1は、本発明の超広帯域偏光子の内部の液晶物質の螺旋の指数関数的なピッチ変動を減少距離の関数としてプロットしたグラフを鎖線で示すと共に、従来技術の広帯域偏光子の内部の液晶物質の螺旋の直線的なピッチ変動の曲線を減少距離の関数としてプロットしたグラフを実線で示しており、

図2は、本発明の超広帯域偏光子の光線の反射率を波長の関数としてプロットしたグラフを実線で示すと共に、従来技術の広帯域偏光子の光線の反射率を波長の関数としてプロットしたグラフを鎖線で示しており、

図3は、重合可能なCLC液晶物質（ネマチック相の）及びフォトイニシエータから成る混合物を含むCLC材料の層が、その表面に強度（I₀）で入射し、CLC層の内側の位置「x」において強度（I_x）を有する化学作用放射線（例えば、紫外線）で重合されている状態を示す断面図であり、

図4は、重合されたCLC膜の液晶物質の螺旋のピッチ分布を測定する原子力顕微鏡（AFM）を用いて撮影した重合された膜の画像の概略図であって、任意の対の黒い線の間の距離でCLCピッチの半分を示しており、

図5は、重合されたCLC膜から成る層に沿う方向のピッチ変動のグラフを黒い四角の点で示すと共に、CLC膜から成る同じ層に沿う紫外線強度の正規化された減衰のグラフを実線で示しており、

図6は、92°Cにおいて0.047mW/cm²の紫外線強度を用いて硬化された20ミクロンの円偏光膜の反射帯域幅をそのネマチックE31の濃度の関数としてプロットして示すグラフである。

本発明を実施する最善の態様

驚くべきことに、2,000 nmまでの超広帯域の偏光反射及び透過特性を有するCLC膜材料を製造するためには、CLC膜材料の中のCLC分子の螺旋のピッチがその深さに沿って非直線的に変わることが重要であることが判明した。

予期しないことであったが、本発明者等は、また、本発明の超広帯域円偏光材料は、(1) CLC(原)出発混合物に紫外線染料を用いることを排除し、また、(2) 重合可能なCLC材料、非架橋性の液晶物質(ネマチック相の)、及び、重合作用(すなわち、硬化作用)の間に用いられる既知量の入射化学作用放射線の存在下で、重合可能なCLCの重合速度を上記液晶物質の偏析速度よりも確実に遅くするような量の適宜なフォトイニシエータ(photoinitiator)を用いることによって、製造することができることも発見した。上述の条件を満足させることによって、本発明から逸脱することなく、超広帯域反射特性を有する円偏光膜材料を種々の方法で製造することができることが判明した。本発明の新規な製造プロセスの詳細を以下に説明する。

CLC偏光膜材料を製造する一般的な方法

本発明の超広帯域円偏光材料を製造する一般的な方法は、以下の成分と一緒に混合する工程を含む。すなわち、そのような成分は、(i) 側鎖環状液晶ポリシロキサンのようなコレステリック配列を有する重合可能な液晶物質、(ii) ネマチックを有する液晶物質、及び、(iii) 上述の製造上の制約を満足する適量のフォトイニシエータである。

後に述べる例1-13に示す本発明の例示的な実施例においては、製造プロセスに使用される重合可能なCLC材料は、Wacker GmbH(ドイツ国)から商業的に入手可能であり、重合可能なCLC材料をフォトイニシエータの存在下で紫外線に暴露した時に、カチオン重合プロセスによって重合される。上記重合可能なCLC材料は、青(CC4039L)、及び、赤(CC4070L)の化合物として入手可能であり、これら化合物は共に、左型螺旋構造を有している。上記青の化合物は、390 nmの偏光されていない光線(以下において、非偏光光線と称する)を反射し、また、上記赤の化合物は、70°CでUV硬化すなわち紫外線硬化された後に690 nmの非偏光光線を反射する。上記重合可能

なC L C材料は、また、C L Cポリシロキサン (C C 4 0 3 9 R) の青の化合物の如き、右型螺旋構造としても入手可能である。この化合物 (C C 4 0 3 9 R) が、C C 4 0 3 9 L のような左型の重合可能なC L Cと適宜な比率で混合されると、その結果生ずるC L C膜は、70°Cで硬化されると、右型の円偏光光線を反射する。生のC L C材料は、硬化される前には、室温でゴム状の状態を示し、70°C付近で液体に変化する。

上述の重合可能なC L C材料と共に使用されるネマチック液晶物質は、E M Industries (ドイツ国) からE 3 1 L V及びE 7として商業的に入手可能である。

後に詳細に述べる例示的な実施例の例においては、重合可能なC L C、ネマチック液晶物質、フォトイニシエータ (及び、ある例においては、キラル添加剤) を所望の比率で計量し、ホットプレート上で一緒に混合する。各々の例において、C L C混合物を、分子配列を良好にするための研磨されたポリイミドコーティングを有するガラスセルの中に導入する。最後に、上記混合物を重合反応が完了するに十分な時間にわたって化学作用光線に暴露されることによって、上記混合物を選択した温度で硬化 (例えば、重合) させる。C L C膜材料を重合させるために使用される上記化学作用放射線 (紫外線) は、硬化されているC L C膜又は層の中で、従来技術の製造プロセスの間に使用される直線的な強度分布ではなく、非直線的 (例えば、指数関数的) な強度分布を示す。これは、C L C混合物の層を形成するために使用される物質によって光線の減衰が生ずるためである。これとは別に、液晶物質又はC L C材料は、最終的に形成される偏光子において液体状態にすることができる。

材料を液体状態に維持する温度で混合した後で、且つ、重合反応の前に、ネマチック液晶物質は、重合可能なC L C材料と弱く結合される。化学作用放射線に暴露されることに応じて、重合反応が、弱く結合された液晶を生じさせてこれを重合可能なC L Cから偏析させ、拡散を開始させる。上記ネマチック液晶物質は、液晶に富むサイトを形成する重合可能なC L Cの膨潤領域に拡散する。液晶が重合可能なC L Cの他の領域から出ることにより、液晶が欠乏するサイトが残る。

放射線強度は、媒体全体にわたって本質的に非直線的（より詳細に言えば、指数関数的）であり、また、重合可能なC L Cの強度の高い領域は、強度の低い領域よりも膨潤しているので、ネマチック液晶物質は、放射線強度の高いサイトに優先的に拡散し、C L Cポリマー材料の中で非直線的な分布を示す。

本発明の超広帯域偏光子は、液晶の偏析速度が重合される物質の重合速度よりも大きい限り、商業的に入手可能な物質を用いて形成することができるので、有利である。

本発明のC L C円偏光膜の超広帯域反射特性

この時点において、C L C偏光材料を横断する方向の非直線的なピッチ分布が、その超広帯域特性にどのように寄与するかを簡単に考えると共に、従来技術の偏光技術に比較してその広帯域の優位性を示す幾つかの実験的に集めたデータを考察することが適当である。この議論に関連して、図面の図1乃至図5を参照する。

図1においては、減少距離 y' の関数として示した直線的なピッチ分布 P_1 （ y' ）と指数関数的なピッチ分布 P_0 （ y' ）との間の比較が行われている。直線的な分布は以下の通り定義される。

$$P_1(y') = 1 + y' = 1 + (y/d) \quad (1a)$$

一方、指数関数的な分布は以下の通り定義される。

$$P_0(y') = e \times p [y'] \quad (1b)$$

上式において、 d は、膜の厚さである。この特徴的なプロットから、指数関数におけるピッチの変化率は、直線関数におけるピッチの変化率よりも、その変化がかなり急激であることが明らかに分かる。同じ厚さに関しては、ピッチが指数関数的な分布に従っている偏光子の帯域幅は、直接的に分布しているピッチを有する偏光子の帯域幅よりもかなり幅が広い。図2は、この事実を、本発明の例示的な実施例の偏光子の代表的な帯域幅を従来技術のC L C偏光子の技術の幅と比較することにより、示している。

図2においては、従来技術の偏光子の反射スペクトル（鎖線で示す）は、偏光子の螺旋方向に合致する左右像を有する円偏光光線を用いて得られた。しかしながら、本発明の円偏光子のスペクトル（実線で示す）は、非偏光光線を用いて測

定した。図2を観察すると、本発明の教示に従って製造された円偏光子の帯域幅は、従来技術の円偏光子の帯域幅の範囲の2倍よりも大きい（全厚さが同じ場合であっても）ことが明らかに分かる。

図3乃至図5においては、本発明のCLC偏光材料を横断する方向の非直線的なピッチ分布がその超広帯域特性に寄与するという事実の証明が更に行われている。図3においては、重合可能なCLCの層又は膜の断面図が示されており、上記層又は膜には、化学作用光線又は紫外線の如き電磁放射線I₀が入射している。また、重合可能なCLC膜1は、ネマチック液晶と、フォトイニシエータとを含んでいる。参照符号2で示す紫外線の形態の放射線は、CLC層1の内側のある位置xにおいて、強度I(x)を有している。ある紫外線吸収率を仮定すると、下式(2)を周知の方法で誘導することができる。

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\alpha x} \quad (2)$$

上式において、吸収率 α は、吸収、散乱等の総ての光線損失源を含む。式(2)を解くと、重合可能なCLC層又は膜1の前方面から後方面まで、強度が指数関数的に減衰することが分かる。

図4には、図3の層1と同様に重合されたCLC層又は膜のピッチ分布を測定した原子力顕微鏡(AMF)の写真が示されている。図4においては、CLC膜又は層の前方部が、図面の右側に位置している。ピッチ変動は、0-10μmの任意の範囲にわたって示されていて、その値のスケールを示している。重合可能なCLC層の断面を用いて、プローブをサンプルの厚さに沿って走査させ、化学作用光線又は紫外線に膜1を暴露した間に偏析して拡散した液晶の量に関連するピッチ変動に応じて、電流変動をプローブに生じさせた。放射線の強度は、膜1の右側で最大であるので、CLC材料のより大きな膨潤は、強度がより大きな領域に生じ、これにより、そのような領域に、拡散液晶物質がより多く集積するサイトがもたらされると予測することができる。その結果、より長いピッチが形成される。勿論、強度がより小さい領域では、より少ない膨潤作用が生じて、拡散液晶物質の集積がより少なくなり、より短いピッチが生ずる。重合反応が完了すると、膜1は、非直線的なピッチ変動を示し、これにより、極めて大きな帯域幅に

わたって入射光線が全反射することができる。勿論、ピッチのより大きな領域は、高い周波数を反射するピッチのより小さな領域よりも、低い周波数を反射する。反射される最も高い周波数と最も低い周波数との間の差が、その偏光子の帯域幅である。

図5を検討すると分かるように、C L C重合膜構造の中のピッチ変動は、実際に、非直線的（この場合には、指数関数的）である。図5には、式（1）の紫外線強度の減衰と図3の膜又は層を横断する方向に測定された図4のピッチ変動との関係がグラフで示されている。図5の実線で示す曲線は、層又は膜1の別個の測定において測定されたUV吸収率（紫外線吸収率）を用いて、式（2）をプロットしたものである。図4から決定されるピッチ変動も、図5にプロットされている。任意の点におけるC L C膜1のピッチの半分が、図4の黒い又は白い線の任意の対の間の距離によって決定される。ナノメートル（nm）単位のピッチが、マイクロメートル（μm）単位の位置に対してプロットされており、また、四角い点は、図5において選択された点におけるピッチの値を示している。図5から、重合されたC L C膜1を横断する方向のC L Cの非直線的なピッチ変動は、重合プロセスの間の光線の損失によって生じる紫外線強度すなわちUV強度の実線の曲線で示す指数関数的な減衰に従うことが分かる。このことは、膜1の厚さ方向の任意の点における重合されたC L C膜1のピッチは、その点における放射線強度に正比例し、また、層1を横断する方向の全ピッチ変動は本質的に指数関数的であることを明らかに示している。

例1

この例においては、上述のC L Cポリシロキサンの赤い化合物（C C 4 0 7 0 L）が、これも上述したE 3 1ネマチック液晶と混合されている。この赤いC C 4 0 7 0 Lは、左型の螺旋方向を有しており、70° Cで硬化された場合に、690 nmで反射する。上記混合物は、重量比で1/2のE 3 1/C C 4 0 7 0 Lと、0.6重量%のI G 1 8 4フォトイニシエータとを含んでいる。フォトイニシエータI G 1 8 4は、C i b a G e i g y（ニューヨーク州Hawthorne）から商業的に入手可能である。上記混合物を20型のガラスセルに導入し

ホットプレートにより与えられる 92°C の温度において 0.047 mW/cm² の紫外線強度で硬化させた。この例においては、CLC ポリシロキサン材料だけが重合され、一方、ネマチック液晶は液体状態のままである。重合反応の後に、その結果生じた円偏光膜材料のスペクトル分析を Perkin-Elmer の Lambda 19 分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を、左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。その結果生じた偏光子は、560 nm から 2,160 nm のスペクトル幅をカバーし、1,600 nm の超広帯域偏光子をもたらした。

例 2

この例においては、CLC ポリシロキサンの青い化合物 (CC4039L) 及びネマチック液晶 (E31) が、0.6 重量% のフォトイニシエータ (IG184) と共に、2:1 の重量比で混合された。20型のガラスセルを用いて、その厚さの膜を設けた。CLC は、92°C において 0.047 mW/cm² の紫外線ランプすなわち UV ランプによって硬化された。その結果生じた偏光層は、370 nm から 1,200 nm のスペクトル幅をカバーし、総ての可視スペクトル及び近赤外線スペクトルの帯域をカバーする 830 nm の超広帯域偏光子をもたらした。例 1 と同様に、液晶物質 (E31) は、硬化反応の後に液体状態のままである。重合反応 (すなわち、硬化反応) の後に、その結果生じた偏光膜材料のスペクトル分析を Perkin-Elmer の Lambda 19 分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。

例 3

上述の 2 つの例は、左型の螺旋方向を有する CLC ポリシロキサンを用いていた。この第 3 の例においては、右型の螺旋 (ねじれ) 方向を有する CLC ポリシロキサンを用いている。そのような螺旋方向を有する青の化合物 (CC4070R) は、Wacker, GmbH (ドイツ国) から商業的に入手可能であり、70°C で硬化させた場合に、390 nm の右型の円形光線を反射する。EM Industries (ドイツ国) から商業的に入手可能なネマチック液晶物質

(M15) が、1重量%のIG184フォトイニシエータと共に、CLCポリシリコサン材料(CC4039R)と1:2の重量比で混合される。この混合物を20型のガラスセルのプレートの間に挟み、122°Cにおいて0.047mW/cm²のUV強度で硬化させる。右型の円偏光光線を反射するその結果生じた円偏光膜材料は、520nmから920nmのスペクトル幅をカバーし、400nmの超広帯域偏光子をもたらした。硬化反応(すなわち、重合反応)の後に、非重合性の液晶(M-15)は、室温において固体状態にある。重合反応の後に、その結果生じたサンプルのスペクトル分析をPerkin-ElmerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。

例4

この例においては、使用したCLC材料は、非重合性であり、一方、ネマチック液晶は、重合可能であって、硬化反応の後にCLCが液晶状態にある超広帯域偏光材料をもたらす。適宜な非重合性のCLC材料を形成するために、液晶物質E31を別の液晶物質ZLI-2309及びキラル添加剤S1011と混合する。これら物質又は添加剤は総て、EM Industries(ドイツ国)から商業的に入手可能である。その結果生じた非重合性のCLC材料は、低い分子量を有しており、上記キラル添加剤は、混合物の中に左型の螺旋構造を生じさせる。E31/ZLI-2309/S1011が、1/1/0.2の重量比で一緒に混合される。次に、CLC材料が、重合可能なネマチック液晶ポリマー材料CN4000と1:2の重量比で混合される。CN4000は、Wacker GmbH(ドイツ国)から商業的に入手可能である。この混合物を、0.6重量%のフォトイニシエータIG184と共に、研磨されたポリイミドで被覆されていて離れている20型ガラス基板から成る2つの部品から形成されたセルの中に導入し、70°Cの温度において0.047mW/cm²のUV強度で硬化させる。ここにおいて、このネマチック液晶物質CN4000は重合し、一方、低分子量のCLC材料は、液体状態のままである。他の総ての例と同様に、液晶物質の偏析速度は、重合可能なCLC材料の重合速度よりも大きい。その結果生じた円偏光膜

材料は、左型の円偏光放射線を反射し、430 nmから1,050 nmのスペクトル幅をカバーして、620 nmの超広帯域偏光子をもたらす。重合反応の後に、その結果生じた円偏光膜材料のスペクトル分析をPerkin-ElmerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。

例5

この例においては、混合物は、ネマチック配列の架橋可能なシロキサンポリマーと、キラル添加剤と、フォトイニシエータ（IG184）とから構成されている。注目すべきことは、非架橋性のネマチック液晶（例えば、E31）が全く加えられていないということである。上記ネマチックシロキサンポリマー（CN4000）は、Wacker（ドイツ国）から入手可能である。上記キラル添加剤は、R1011、CB15、及び、CE1（総て、Merck, EMIから入手可能）から構成されている。この混合物は、CN4000/R1011/CB15/CE1/IG184=0.75:0.03:0.11:0.11:0.017（重量比）である。次に、上記混合物を研磨されたポリイミドコーティングを有する20型のガラスセルの中に充填する。80°Cにおいて約0.2mW/cm²の紫外線に十分な時間にわたって暴露させた後に、広帯域反射偏光子が得られ、この偏光子は、360から750 nmの帯域幅を有していた。上記キラル添加剤は、右型の螺旋方向を有しているので、この偏光子は、右型の円偏光光線を反射する。この例の重要な点は、本発明の教示に従って超広帯域円偏光膜材料を形成するために、非架橋性の低分子量ネマチック液晶を必ずしも添加する必要がないということである。キラル添加剤と単に混合されたネマチック液晶ポリマーは、同様の超広帯域偏光子を形成することになる。同じ機構、すなわち、重合反応により誘起される分子再分布（PIMRD）が、この例において依然として有効である。キラル添加剤の総ての組成（すなわち、R1011、CB15、CE1）は、非架橋性であるので、キラル分子は、重合反応の間にネマチックポリマーの網状組織からの相分離及び偏析を生ずる。そのような偏析したキラル分子は、紫外線の伝播方向に沿って拡散を始めて集積を生じ、CLCピッチがそれぞ

れ短く及び長くなるサイトにおいてキラル分子の欠乏を生じさせる。最後に、ピッヂ勾配が形成される。注目すべきことは、上記キラル添加剤は、複数の化合物フォーマットを有するということである。別の実験によって証明されるように、上記キラル化合物の中の2つの化合物、すなわち、CB15及びCE1は、液晶ポリマーの網状組織から相分離を起こし、重合反応の間に紫外線の伝播方向に沿って拡散する。しかしながら、第3のキラル化合物すなわちR1011は、相分離及び拡散の明瞭な証拠を示さない。重合反応の後に、その結果生じた円偏光膜材料のスペクトル分析をPerkin-ElemerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。

例6

この例においては、プラスチック基板に設けられていて、その一方の面には基板がない可能性が高い、超広帯域CLC円偏光材料を製造する方法を説明する。この例で使用される液晶混合物は、本明細書全体を通じて述べられているいずれか一つの液晶混合物とすることができます。代表的なプラスチック基板は、PETである。PETの表面は、研磨されたポリイミドコーティングで処理することができ、あるいは、そのような処理を施さなくても良い。ポリイミドコーティングを全く必要としない場合には、全製造プロセスは、かなり簡単になる。PET基板に必要とされる唯一の処理は、その露出された表面を機械的に研磨することである。CLC混合物を一つのプラスチック基板に塗布し、その後、第2のPETシートを被せる。その後、そのパッケージ全体を適宜な温度のラミネータに供給する。ラミネーションすなわち積層作業の後に、均一なCLC膜が、2枚のプラスチックシート材料の間に形成される。次に、この膜に80°Cにおいて適宜な強度の紫外線を十分な時間にわたって暴露させる。プラスチックシートの間に、超広帯域CLC偏光子が形成される。吸光率を含む光学的な性質は、研磨されたポリイミドを有する2つのガラス基板の間の性質と同様である。最後に、一方のプラスチック基板を剥離して、一方の面に基板が存在しないようにすることができます。上述の方法は、以下の利点を有している。すなわち、(1) 偏光子の全厚

さは、プラスチックシートが極めて薄いので、0.25mmまで大幅に減少され
 、（2）偏光子は機械的に可撓性を有しており、（3）製造手順が簡単であり、
 （4）大型の偏光子を製造することができ、（5）コストが十分に低減される。
 重合反応の後に、その結果生じた円偏光膜材料のスペクトル分析をPerkin
 -ElmerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射
 スペクトルの両方を左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。

例7

この例においては、新しく開発された短ピッチCLC液晶ポリマーを用いて、
 広帯域CLC円偏光膜材料を形成する。この材料（コードネームは、Wacker
 r（ドイツ国）のCLM001CCである）は、309nmの選択的な反射波長
 において、左型の円偏光光線を反射する。このCLC材料は、適量のフォトイニ
 シエータ（例えば、Cyberon GeigyのIG184）と混合した後に、紫外
 線重合させることができる。広帯域偏光膜材料を形成するために、短ピッチの重
 合可能なCLC材料を非架橋性の低分子量ネマチック物質E7（EMI）と混合
 する。広帯域偏光子の材料組成は、CLM001CC/E7/IG184=0.
 157/0.065/0.0047（重量比）である。この混合物を研磨された
 ポリイミドコーティングを有する20型のガラスセルの中に充填する。70°C
 において適宜なUV強度に十分な時間にわたって暴露させた後に、370nmか
 ら850nmの非偏光光線をおよそ50%反射する広帯域CLC偏光子が得られ
 た。M15（Merck）の如き他の非架橋性のネマチック液晶を混合すること
 により、同様な結果が得られた。重合反応の後に、その結果生じたサンプルのス
 ペクトル分析をPerkin-ElmerのLambda 19分光光度計で行った。
 透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を左型光線、右型光線及び非偏光
 光線で測定した。

例8

この例においては、自立型の広帯域CLC円偏光膜材料を製造する方法を説明
 する。この材料の混合物は、CLM001CC/M15/IG184=2/1/
 0.06（重量比）を含んでいる。この混合物を研磨されたポリイミドを有する

20型のガラスセルの中に充填した。このサンプルを80°Cにおいて0.011mW/cm²のUV強度で硬化させた。その結果生じた膜は、370nmから770nmを反射する。重合反応の後にガラス基板上に支持された状態で、その結果生じた円偏光膜材料のスペクトル分析をPerkin-ElemerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルを左型光線、右型光線及び非偏光光線で測定した。その後、一方のガラス基板を機械的に取り除いた。次に、この広帯域膜を残ったガラス基板から離した。自立型の広帯域偏光膜が得られた。剥離の前後のこの膜のスペクトルは、自立型の広帯域偏光膜の光学特性が変わっていないことを示している。その結果製造された広帯域円偏光膜は、極めて高い可撓性を有しており、任意の角度まで曲げることができる。また、そのような広帯域円偏光膜は、任意の基板に積層することができる。

例9

この例においては、上記自立型のCLC円偏光膜に基づいて準広帯域直線偏光子を製造する方法を説明する。この直線偏光子は、上で製造された自立型のCLC偏光膜をポリビニルアルコール(PVA)の引伸しシートの如き4分の1波長のプレート又はシートの上に直接積層させることによって、得られた。このラミネーションすなわち積層作業は、ラミネータを用いて行われる。この場合にも、積層作業の後に、光学的な性質の低下は明らかに全く観察されなかった。積層作業の後に、その結果生じた準広帯域直線偏光子のスペクトル分析をPerkin-ElemerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を測定した。

選択に応じて、本発明の自立型のCLC円偏光膜を別のタイプの相遅延プレートに積層し、要求に応じて又は必要に応じて、円偏光膜構造又は直線偏光膜構造を得ることができる。これに関連して、偏光状態の変換(すなわち、直線偏光対円偏光、円偏光対直線偏光、直線偏光対直線偏光、円偏光対円偏光、非偏光対直線偏光、及び、非偏光対円偏光)の原理についての優れた指針及び概要を示す、本件出願人の米国特許第5,221,982号を参照されたい。この米国特許は、参考として本明細書に組み込まれる。

例10

この例においては、本発明の上記超広帯域円偏光材料に基づいて特殊な広帯域偏光インクを製造する方法を説明する。この方法によれば、自立型の広帯域円偏光膜を上述のように製造する。次に、この自立型の膜を、本明細書に参考として組み込まれている本件出願人の米国特許第5, 364, 557号（発明の名称：“Cholesteric Liquid Crystal Inks”）に記載されているいづれかの技術を用いて、ミクロンサイズのフレークすなわち破片に機械的に破碎する。その後、このCLCフレークを、光学的に透明で熱硬化可能なラッカー（例えば、M a r a b u（ドイツ国）のP U Lワニス）のようなキャリア液体と混合する。これにより形成された広帯域CLC系のインクの光学的な性質を検査するために、該CLCインクを放射線吸収性の基板（すなわち、黒のバックグラウンドをもたらす）の上にスクリーン印刷した。しかしながら、上記CLCインクは、2-D又は3-Dの表面特性を有する事実上任意の放射線吸収性の表面に塗布することができることは理解されよう。このCLCインクの消滅速度を直交する一対の円偏光子で検査した。CLCフレークは、依然として、左型の偏光特性を有している（すなわち、左型の円偏光光線を反射する）ので、明るい白色光線は、塗布されたインクを覆う左型の偏光子を通って、インクから反射されるのが観察される。そうでなければ、そのようなインクが右型の円偏光子で覆われているように、黒いバックグラウンド（背景色）が見える。その結果生じたCLCインクのスペクトル分析をP e r k i n-E l m e rのL a m b d a 19分光光度計で行った。左型光線、右型光線及び非偏光光線で透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を測定した。

本件出願人の上記米国特許第5, 364, 557号に開示されるいづれかの技術を利用して、本発明の超広帯域円偏光材料を用いてCLC塗料を製造することができる。CLC染料（例えば、インク及び／又は塗料）にカラー特性（色特性）を与えるために、「本発明のCLC円偏光材料の帯域幅及びスペクトル位置の調節」と題する項目において後に説明する技術のいづれかを用いて、優れた結果を得ることができる。

例1.1

この例においては、使用されたCLC材料は、Wacker GmbH（ドイツ）から商業的に入手可能な重合可能な左型のポリシロキサンであるCLC（CC4039L）であって、このCLCは、非重合性のネマチックE7、及び、キラル添加剤R1011と混合されている。上記ネマチック及びキラル添加剤は共に、EM Industries（ドイツ）から商業的に入手可能である。この重合可能なCLC材料（CC4039L）は、左型の螺旋構造を有しており、一方、上記キラル添加剤（R1011）は、右型の螺旋構造を有している。この材料E7/CC4039L/R1011/IG184は、重量比で1/2/0.1/0.012の比の混合物として存在している。IG184は、フォトイニシエータである。この混合物を研磨されたポリイミドコーティングを有する20型の厚いガラスセルの中に導入し、82°Cにおいて0.047mW/cm²のUV強度で硬化させた。この例においては、コレステリック液晶物質（CC4039L）は重合し、一方、ネマチック（E7）は、硬化反応の後に液体状態のままである。他の例と同様に、非重合性の液晶の偏析速度は、ポリシロキサンの重合速度よりも大きい。重合反応の後に、その結果生じたサンプルのスペクトル分析をPerkin-ElemerのLambda 19分光光度計で行った。透過スペクトル及び反射スペクトルの両方を、右型光線、左型光線及び非偏光光線で測定した。その結果生じたCLC円偏光膜は、左型の円偏光放射線を反射して、800nmから1,428nmのスペクトル幅をカバーし、電磁スペクトルの近赤外線（IR）の領域の600nmよりも高い超広帯域偏光子をもたらした。この例においては、キラル添加剤を用いて、帯域位置を調節し、それぞれの濃度で使用可能な帯域を調節することになる。

例1.2

この例においては、非架橋性のネマチック液晶と混合したコレステリック配列を有するアクリル系液晶化合物に基づいて、広帯域CLC偏光子を製造する。この例においては、青及び赤の波長の右型円偏光光線を反射する重合可能な2つのアクリル系コレステリック液晶化合物であるCM95及びCM94（ドイツ）L

udwigshafenのBASF, Aktiengesellschaftを使用している。青の化合物CM95を、非架橋性のネマチックM15(EMI)、及び、フォトイニシエータIG184(Cyb a Geigy)とCM:M15:IG184=2:1:0.06の比率(重量比)で混合する。この混合物を研磨されたポリイミドコーティングを有する20型のガラスセルの中に充填し、35°Cにおいて適宜な紫外線で十分な時間にわたって硬化させる。その結果生じた広帯域偏光子は、590nmから900nmの右型の光線を反射し、約310nmの帯域幅を有している。E7等の如き他のネマチック物質も、アクリル系CLCと混合されて紫外線に暴露された場合に、偏光帯域幅を拡張することができる。

本発明のCLC円偏光材料の帯域幅及びスペクトル位置の調節

本発明のCLC円偏光膜材料の帯域幅及びスペクトル位置(すなわち、「チューニング(同調)」)は、種々の目的(例えば、CLC染料にカラー特性を与える、偏光子の濾波特性を設計したりする)のために、多くの方法で調節することができる。本発明のCLC円偏光材料のいずれかの実施例を用いて、そのような機能すなわち方法を実行するための幾つかの技術を、以下に説明する。

第1の手法は、本発明の円偏光膜材料の厚さを調節することによって、そのスペクトル幅を調節する。例えば、0.6%のIG184を含む材料E31/CC4039L=1:2(重量比)を用い、膜厚を5から20まで変化させた場合に、偏光子の帯域幅を580nmから800nmまで増大させることができる。その後、偏光膜を92°Cにおいて0.047mW/cm²のUV強度で硬化させる。

第2の手法は、キラル添加剤の濃度を変えることによって、円偏光膜材料のスペクトル幅を調節する。例えば、0.6%のIG184を含み20の膜厚を有する材料E31/CC4039L=1:2(重量比)を用いて、偏光膜を70°Cにおいて0.047mW/cm²のUV強度で硬化させる。S1011キラル添加剤の濃度を0%から6.6%まで増大させると、帯域幅は、980nmから460nmまで減少する。また、キラル濃度を増大させると、中心波長は、より短い波長に向かう「青」のシフトを有する。

第3の手法は、硬化温度を変えて偏光子のスペクトルを調節する。例えば、0.6%のIG184を含んでいて20の膜厚を有している材料E31/CC4039L=1:2(重量比)を用いて、サンプルを0.047mW/cm²のUV強度で硬化させる。硬化温度が92°Cから70°Cまで低下した場合には、中心波長は、より長い波長に向かう「赤」のシフトを有する。

第4の手法は、フォトイニシエータの濃度を変えて、偏光子のスペクトルを調節する。例えば、20の膜厚を有する材料E31/CC4039L=1:2を用いて、サンプルを92°Cにおいて0.047mW/cm²のUV強度で硬化させる。一般的に、フォトイニシエータ(IG184)の濃度が増大すると、偏光子の帯域幅は減少する。

第5の手法は、ネマチック液晶の濃度を変えて、偏光子のスペクトルを調節する。例えば、CC4039L化合物に関して0.6%のIG184を含むCC4039Lの中のE31から成る液晶混合物を用いて、種々の混合物を研磨されたポリイミドコーティングを有する20型のガラスセルの中に充填する。総てのサンプルは、92°Cにおいて0.047mW/cm²のUV強度で硬化された。

図6に明らかに示されるように、生の出発混合物の中のネマチック液晶(E31)の濃度を変えることにより、帯域幅を増大させることができる。

大部分の上述の例は、商業的に入手可能な重合可能なCLC、及び、液晶物質を用いて、超広帯域偏光膜構造を製造することができることを示している。しかしながら、本発明の製造技術は、メソジエニック基(mesogenic group)がヒドロシリレーション(hydrosilylation)によってシロキサンのバックボーンに接合している、任意の環状液晶シロキサン、並びに、アクリル系の如き他の液晶ポリマーと共に使用することができることを理解する必要がある。

同様に、上述の例で使用されたネマチック液晶物質は総て、商業的に入手可能であるが、低分子量の任意の非重合性ネマチック液晶物質を用いて本発明を実施することができることも理解する必要がある。また、例4に示すように、重合可能なネマチックは、その相対的な拡散速度がその重合速度よりも大きい限り、使

用することができる。

使用されるネマチックは、EM Industries (ドイツ国) から商業的に入手可能なK15、K24及びM15のような単一化合物の液晶とすることができる。EM Industries (ドイツ国) から商業的に入手可能なE31及びE7、並びに、EM Industries (ドイツ国) から商業的に入手可能なZLI-2309及びZLI-5800-100のような複数の化合物から成る液晶物質の混合物を用いて、本発明を実施することもできる。上述の液晶は、室温においてスメクチック状態であるK24を除いて、総て室温においてネマチック状態である。上記液晶は、重合可能なCLC材料及びフォトイニシエータと組み合わされると、少なくとも700nmの超広帯域を有する偏光子を生成する。最後に、重合可能なCLC材料の中の液晶物質の濃度が1/6の重量比よりも小さい低濃度においては、その結果生ずる帯域幅が急激に低下し、これにより、低濃度のネマチック物質が限界要因であることを示す。また、CLCに対するネマチックの濃度が2/3のように高濃度である時には、混合物が適当に低い温度で重合された場合には、高い反射を生じ、そうでなく、混合物が不適当な高い温度で硬化された場合には、光散乱が生ずることを理解する必要がある。

上述の例においては、広帯域偏光子を形成するために特定の紫外線強度を選択した。重合速度が入射する紫外線の強度に関連する限りにおいて、E7の如きネマチックをCC4039Lの如きCLC材料と1/2の比率で用いた場合には、その結果生ずる偏光子の帯域幅は、紫外線強度が増大するに連れて、減少する。例えば、0.047mW/cm²の強度において、その結果生ずる帯域幅は、980nmである。0.97mW/cm²の強度において、その結果生ずる帯域幅は、92°Cで硬化した場合には、700nmであり、また、92°Cにおいて7.1mW/cm²で硬化した場合には、その結果生ずる帯域幅は、280nmである。このことは、紫外線の強度を調節することにより帯域幅を調節することができることを明らかに示している。

CLCの螺旋ピッチが指数関数的な分布を有するものとして好ましい実施例を特徴づけて説明したが、本発明の原理から逸脱することなく、厳密な指数関数的

な分布から離れることを理解する必要がある。従って、材料又は物質の中の不純物、放射線エネルギーの変化、及び、重合反応の変化により、理想的な指数関数から離して、単に本質的に非直線的であると述べることのできる偏光子の厚さ方向の液晶分布をもたらすことができる。上記理想的な指数関数から離れることが、その分布が指数関数的である場合に得られる帯域幅の向上に影響を与えるように思われる。

、可視光線、赤外線及び紫外線の範囲を含む電磁スペクトルの広い部分をカバーすることができる、本発明の単一層の偏光子を製造することができる。上述した総ての事柄から、重合可能なC L C材料に染料又は拡散成分を用いることなく、本発明の技術を用いて超広帯域偏光子を製造することができることを理解する必要がある。

上述の変更例は、単なる例示である。上に説明した実施例に対する他の変更例を当業者が容易に考えることを理解する必要がある。そのような変更例及び変形例は総て、請求の範囲に記載される本発明の範囲及び精神に含まれるものと見なされる。

【図1】

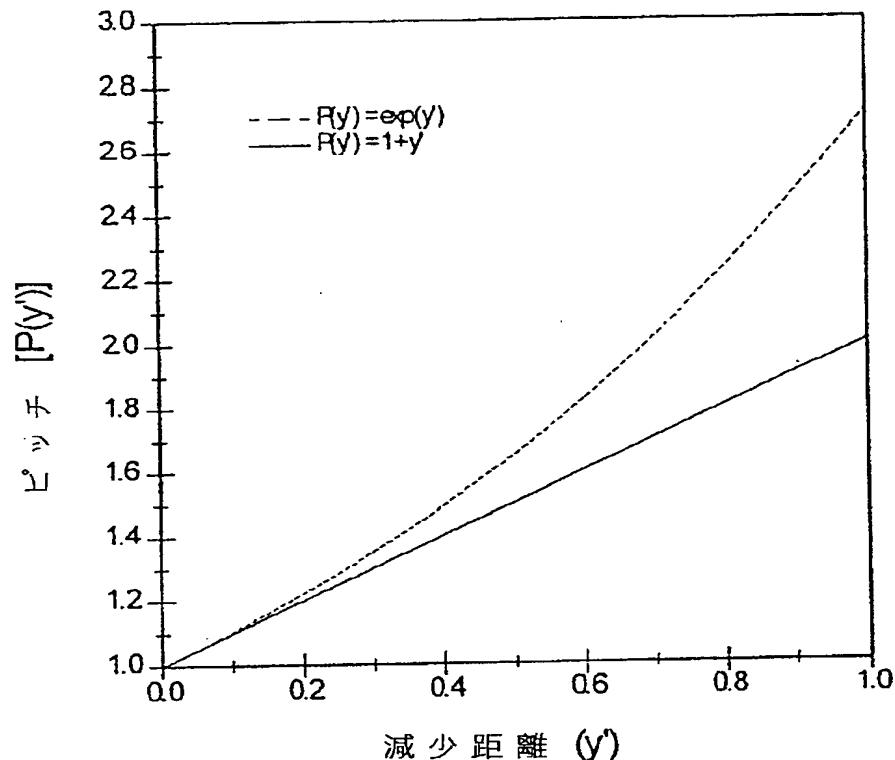


FIG. 1

【図2】

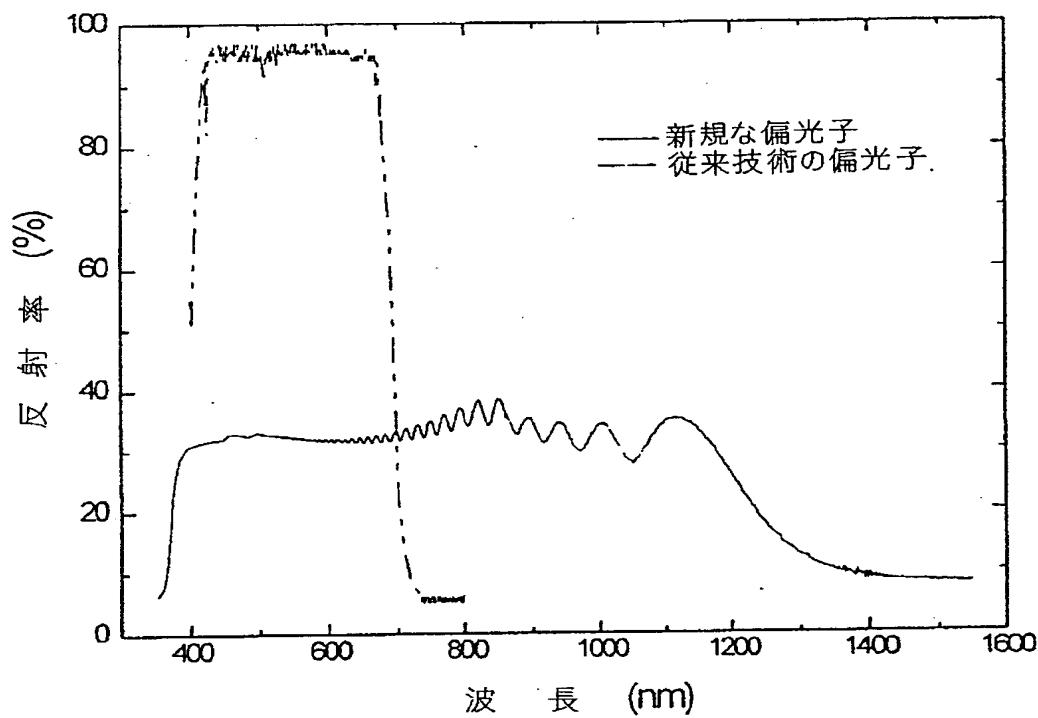


FIG. 2

【図3】

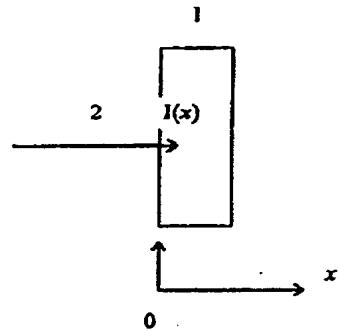


FIG.3

【図4】



FIG.4

【図5】

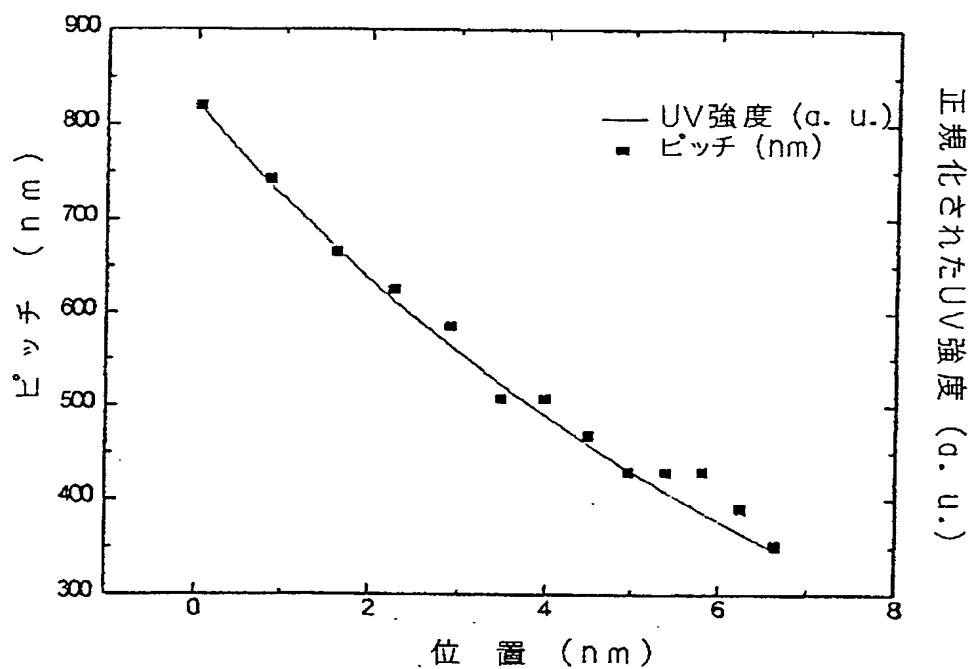
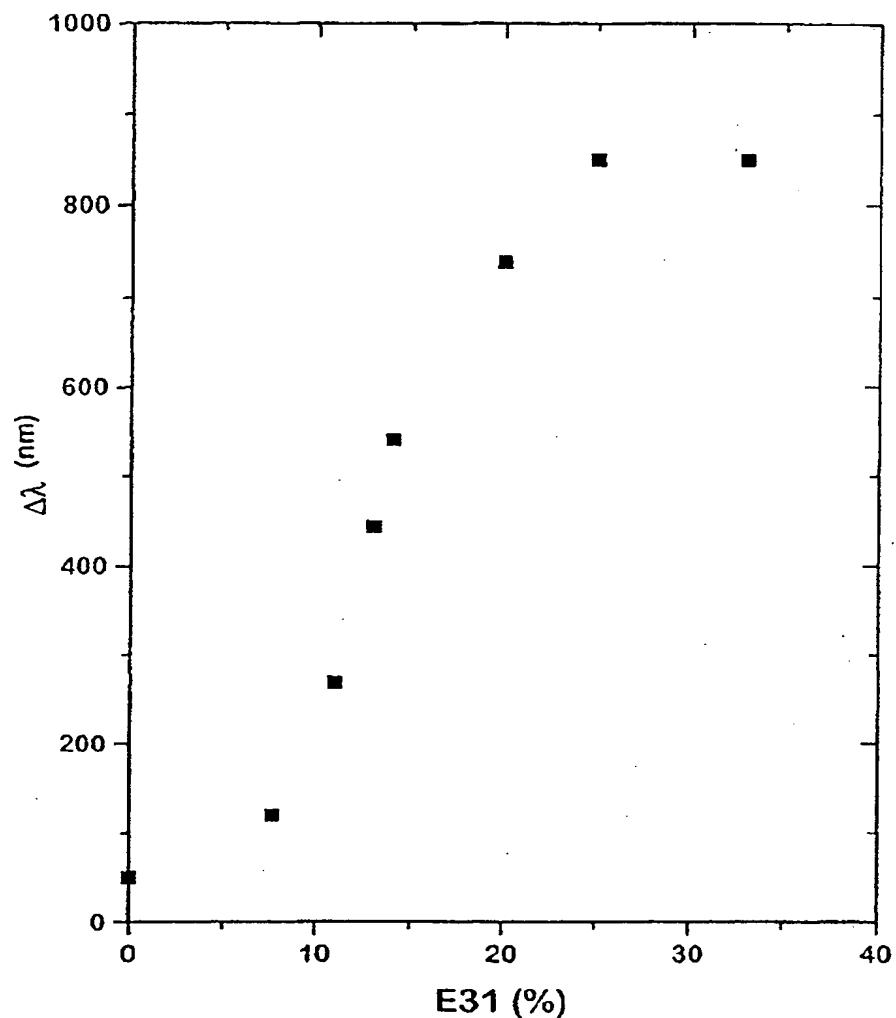


FIG.5

【図6】

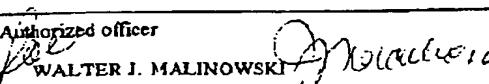
ネマチック濃度の関数としての帯域幅 (20ミクロンの膜)



A : %E31aオリジナル

FIG. 6

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US96/17464
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC(6) :Please See Extra Sheet. US CL :359/37, 51, 52, 65, 500; 252/299.7, 585 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) U.S. : 359/37, 51, 52, 65, 500; 252/299.7, 585		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) Please See Extra Sheet.		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A , P	US 5,506,704 A (BROER et al.) 09 April 1996, col. 9, lines 23-37, col. 10, lines 61-62, col. 11, line 16, through col. 12, line 10.	1-96
A	US 5,427,828 A (PARK) 27 June 1995, col. 1, lines 49-61, col. 6, lines 10-33, col. 8, line 62, through col. 9, line 3.	6, 18, 23, 29, 30, 42, 47, 54, 56, 59, 72, 83
A	US 4,637,896 A (SHANNON) 20 January 1987, col. 3, lines 3-20 and 33-41.	1-96
A	US 4,388,453 A (FINKELMANN et al.) 14 June 1983, see the entire document.	15
A	US 3,650,603 A (HEILMEIER et al.) 21 March 1972, see the entire document.	6, 30, 72, 83
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document published on or after the international filing date "L" document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 08 DECEMBER 1996	Date of mailing of the international search report 24 DEC 1996	
Name and mailing address of the ISA/US Commissioner of Patents and Trademarks Box PCT Washington, D.C. 20231 Facsimile No. (703) 308-7726	Authorized officer  WALTER J. MALINOWSKI Telephone No. (703) 305-6531	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US96/17464

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER:

IPC (6):

G02F 1/13, 1/1335; G02B 5/30, 27/28; C09K 19/36; G02C 7/12; F21V 9/14

B. FIELDS SEARCHED

Electronic data bases consulted (Name of data base and where practicable terms used):

APS, DIALOG

search terms: pitch, gradient, nematic, smectic, cholesteric, chiral nematic, oligomer, monomer, polymer, polarizer, polymer matrix, cationic polymerization, segregation, phase separation, polymerization, broad band, wide band

フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE,
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, L
U, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF
, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE,
SN, TD, TG), AP(KE, LS, MW, SD, S
Z, UG), UA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD
, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ
, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, HU, I
S, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LK, LR
, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN,
MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, S
D, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT
, UA, UG, US, UZ, VN

(72)発明者 ファリス, サデグ・エム

アメリカ合衆国ニューヨーク州10570, プ
レザントヴィル, ポキヤンティック・リバ
ー・ロード 24

This Page Blank (uspto)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

This Page Blank (uspto)